

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-283379

(43)Date of publication of application : 29.10.1996

(51)Int.Cl. C08G 59/06
C08G 59/18
C08G 59/20
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 07-090649

(71)Applicant : DAINIPPON INK & CHEM INC

(22)Date of filing : 17.04.1995

(72)Inventor : OGURA ICHIRO
TAKAHASHI KATSUJI

(54) SEMICONDUCTOR SEALING MATERIAL

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a semiconductor sealing material which can cope with higher mounting densities because of very good flowability and also has good shelf stability by using as the principal component a polyepoxy compound having specified groups as the epoxy groups.

CONSTITUTION: This material is composed essentially of a polyepoxy compound having β -alkylglycidyl groups as the epoxy groups, a curing agent, and an inorganic filler. Examples of preferable polyepoxy compounds having β -alkylglycidyl groups include di- β -alkylglycidyl ethers of bisphenols and β -alkylglycidyl ethers of naphthols, among which di- β -alkylglycidyl ethers of hydroxynaphthalene are preferable in particular. A preferable β -alkylglycidyl group is a β -methylglycidyl group. The polyepoxy compound is obtained by, for example, the condensation of a β -methylepialohydrin and a polyhydric phenol compound.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 04.04.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-283379

(43) 公開日 平成8年(1996)10月29日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 G 59/06	NH J		C 0 8 G 59/06	NH J
59/18	NKK		59/18	NKK
59/20	NHQ		59/20	NHQ
H 0 1 L 23/29			H 0 1 L 23/30	R
23/31				
審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 7 頁)				

(21) 出願番号 特願平7-90649

(22) 出願日 平成7年(1995)4月17日

(71) 出願人 000002886

大日本インキ化学工業株式会社
東京都板橋区坂下3丁目35番58号

(72) 発明者 小椋 一郎

千葉県市原市辰巳台東4-4-436

(72) 発明者 高橋 勝治

千葉県佐倉市染井野5-21-2

(74) 代理人 弁理士 高橋 勝利

(54) 【発明の名称】 半導体封止材料

(57) 【要約】

【構成】 1, 6-ジヒドロキシナフタレンに代表される多価フェノールに、 β -メチルエピクロルヒドリンを反応させて得られるエポキシ化合物と、硬化剤と、無機充填材とを含有する半導体封止材料。

【効果】 流動性が著しく良好で高実装密度化に充分対応可能であって、かつ、保存安定性をも有する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 β -アルキルグリシジル基をエポキシ基として有する多価エポキシ化合物（A）、硬化剤（B）及び無機充填材（C）を必須成分とすることを特徴とする半導体封止材料。

【請求項2】 β -アルキルグリシジル基が、 β -メチルグリシジル基である請求項1記載の半導体封止材料。

【請求項3】 多価エポキシ化合物（A）が、ビスフェノール類の β -アルキルグリシジリエーテル、又は、ナフトール類の β -アルキルグリシジリエーテルである請求項1または2記載の半導体封止材料。

【請求項4】 多価エポキシ化合物（A）を、 β -アルキルエピハロヒドリンと多価フェノール化合物との縮合反応物（A'）として用いる請求項1、2又は3記載の半導体封止材料。

【請求項5】 縮合反応物（A'）が、 β -アルキルエピハロヒドリンとエピハロヒドリンと多価フェノール化合物とを反応させたものである請求項4記載の半導体封止材料。

【請求項6】 β -アルキルエピハロヒドリンとエピハロヒドリンとの使用割合が、前者／後者のモル比で90／10～30／70である請求項5記載の半導体封止材料。

【請求項7】 縮合反応物（A'）中の全塩素量が、800ppm以下である請求項4、5又は6記載の半導体封止材料。

【請求項8】 無機充填材（C）の含有率が、材料中80～95重量%である請求項1～7の何れか1つに記載の半導体封止材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は新規な特に保存安定性と流動性に優れた半導体封止材料に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、半導体パッケージは、高実装密度化に対応し薄型化する傾向にあり、厚さ1mm以下のT SOP型パッケージも使用される様になっている。これに対応して半導体封止材料も、より流動性が高い材料が求められている。

【0003】 これまで、半導体封止材料用のエポキシ樹脂として、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂（以下「ECN」という）を使用した半導体封止材用エポキシ組成物が広く用いられているが、当該樹脂を使用した半導体封止材は、耐熱性には優れるものの、熔融粘度が高いため、流動性が著しく悪く、前記高実装密度化への対応が困難になるという欠陥を有していた。一方、液状型ビスフェノール型エポキシ樹脂を使用した半導体封止材も知られているが、低熔融粘度のため、流動性の良好な封止材料が提供可能なものの、耐熱性が悪く実用に供し得ないものでり、また、保存安定性が極めて悪い

ものであった。

【0004】 そこで従来より、流動性並びに耐熱性に優れた高実装密度化に対応し得る半導体封止材料としては、例えば、1, 6-ジヒドロキシナフタレンにエピクロロヒドリンを反応させて得られるナフタレン系エポキシ樹脂を主剤として用いた半導体封止材料が知られている。

【0005】

【解決しようとする課題】 しかし、上記1, 6-ジヒドロキシナフタレンにエピクロロヒドリンを反応させて得られるナフタレン系エポキシ樹脂を主剤として用いた半導体封止材料は、熔融粘度が低く流動性に優れるものの、半導体封止材料の保存安定性が極めて悪く、そのため実用時に、設計当時よりも速硬化性となりフローが短縮され、成形性に不具合を引き起こすことという大きな課題を有していた。

【0006】 本発明が解決しようとする課題は、優れた保存安定性と、流動性とを兼備した半導体封止材料を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明者等は鋭意検討した結果、エポキシ基として β -アルキルグリシジル基を有する多価エポキシ化合物を主剤として用いることにより、上記課題を見だし本発明を完成するに至った。

【0008】 即ち、本発明は、 β -アルキルグリシジル基をエポキシ基として有する多価エポキシ化合物

（A）、硬化剤（B）及び無機充填材（C）を必須成分とすることを特徴とする半導体封止材料に関する。

【0009】 β -アルキルグリシジル基をエポキシ基として有する多価エポキシ化合物（A）において、 β -アルキルグリシジル基としては特に限定されるものではないが、例えば、 β -メチルグリシジル基、 β -エチルグリシジル基、 β -プロピルグリシジル基、 β -ブチルグリシジル基等が挙げられるが、なかでも保存安定性が著しく良好である点から β -メチルグリシジル基が好ましい。

【0010】 上記した β -アルキルグリシジル基を有する多価エポキシ樹脂としては、具体的には、ビスフェノールAのジ- β -アルキルグリシジリエーテル、ビスフェノールFのジ- β -アルキルグリシジリエーテル、ビスフェノールSのジ- β -アルキルグリシジリエーテルに代表される、ビスフェノール類のジ- β -アルキルグリシジリエーテル；ビフェノールのジ- β -アルキルグリシジリエーテル、テトラメチルビフェノールのジ- β -アルキルグリシジリエーテルに代表されるビフェノール類のジ- β -アルキルグリシジリエーテル；ジヒドロキシナフタレンのジ- β -アルキルグリシジリエーテル、ピナフトールのジ- β -アルキルグリシジリエーテルに代表されるナフトール類の β -アルキルグリシジリエーテル；フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物のポリ- β -アルキルグリシジリエーテル；クレゾール-ホ

ホルムアルデヒド重縮合物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテルに代表されるC1~C10のモノアルキル置換フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテル；キシレノール-ホルムアルデヒド重縮合物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテルに代表されるC1~C10のジアルキル置換フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテル；ビスフェノールA-ホルムアルデヒド重縮合物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテルに代表されるビスフェノール類-ホルムアルデヒド重縮合物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテル；フェノール類とジシクロペンタジエン、リモネン、ピネン等の環状ジエンとの重付加物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテル；フェノール類とジビニルベンゼンの重付加物のポリ-β-アルキルグリシジルエーテル等が挙げられる。

【0011】なかでも流動性及び保存安定性が良好である点からビスフェノール類のジ-β-アルキルグリシジルエーテル、並びに、ナフトール類のβ-アルキルグリシジルエーテルが好ましく、特に、耐熱性が著しく良好であり、耐熱性、流動性及び保存安定性の何れも良好となる点からジヒドロキシナフタレンのジ-β-アルキルグリシジルエーテルが好ましい。ジヒドロキシナフタレンのジ-β-アルキルグリシジルエーテルには数種の異性体があるが、その中でも耐熱性が優れる点から1, 6-ジヒドロキシナフタレンのジ-β-アルキルグリシジルエーテルが好ましい。

【0012】上記した多価エポキシ化合物(A)は、上記した化合物の如く、その全てのエポキシ基がβ-アルキルグリシジル基の化合物である必要はなく、その一部がグリシジル基のものであってもよい。また、グリシジル基のみを有するエポキシ化合物との共存下に使用することもできる。

【0013】この様な多価エポキシ化合物(A)を得る方法としては、特に制限されるものではないが、β-メチルエピハロヒドリンと多価フェノール化合物の縮合反応させる方法が挙げられ、この縮合反応物(A')を多価エポキシ化合物(A)を含有するエポキシ樹脂成分として使用することが好ましい。

【0014】ここで用いるβ-アルキルエピハロヒドリンとしては、特に制限されるものではないが、β-メチルエピクロロヒドリン、β-メチルエピブロモヒドリン、β-メチルエピフロロヒドリン等のβ-メチルエピハロヒドリン、β-エチルエピクロロヒドリン、β-エチルエピブロモヒドリン、β-エチルエピフロロヒドリン等のβ-エチルエピハロヒドリン、β-プロピルエピクロロヒドリン、β-プロピルエピブロモヒドリン、β-プロピルエピフロロヒドリン等のβ-プロピルエピハロヒドリン、β-ブチルエピクロロヒドリン、β-ブチルエピフロロヒドリン

等のβ-ブチルエピハロヒドリン等が挙げられるが、なかでも多価フェノールとの反応性並びに流動性の点からβ-メチルエピハロヒドリンが好ましい。

【0015】また、多価フェノール化合物としては、1分子中に2個以上の芳香族性水酸基を含有した化合物であれば、種類は限定されないが、例示するならばビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS等のビスフェノール類、ピフェノール、テトラメチルピフェノール等のピフェノール類、ジヒドロキシナフタレン、ピナフトール等のナフトール類、フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるフェノールノボラック樹脂、クレゾール-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるC1~C10のモノアルキル置換フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物、キシレノール-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるC1~C10のジアルキル置換フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物、ビスフェノールA-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるビスフェノール類-ホルムアルデヒド重縮合物、その他、フェノールとC1~C10のモノアルキル置換フェノールとホルムアルデヒドとの共重縮合物、フェノール類とジシクロペンタジエン、リモネン、ピネン等の環状ジエンとの重付加物、フェノール類とジビニルベンゼンの重付加物等が挙げられる。なかでも流動性及び保存安定性の点からビスフェノール類、ナフトール類が好ましく、特に耐熱性が良好となって、耐熱性、流動性及び保存安定性の何れも良好となる点からジヒドロキシナフタレンが好ましい。また、多価エポキシ化合物(A)の具体例における場合と同様にジヒドロキシナフタレンには数種の異性体があるが、その中でも耐熱性が優れる点から1, 6-ジヒドロキシナフタレンが好ましい。

【0016】また、縮合反応物(A')を製造する際、β-アルキルエピハロヒドリンのみを用いて反応を行ってもよいが、目的に応じてエピハロヒドリンを一部併用することにより流動性をより向上させることができる。然し乍ら、β-アルキルエピハロヒドリンの使用割合を高めることにより、保存安定性が極めて優れたものとなる他、更にエポキシ樹脂に含まれる不純物塩素量がより低減されるという効果を発現するため、その混合比率を用途、要求特性に応じて適宜調整することができる。

【0017】特にこれらの特性バランスが良好となる点からβ-アルキルエピハロヒドリン/エピハロヒドリンのモル比で90/10~30/70の範囲が好ましく、特に80/20~40/60の範囲が好ましい。

【0018】尚、上記の如く、β-アルキルエピハロヒドリンとエピハロヒドリンとを併用して多価フェノールと反応させた場合、得られる縮合反応物(A')は、エポキシ基の全てがβ-アルキルグリシジル基の化合物(化合物(A))、化合物中にβ-アルキルグリシジル基とグリシジル基とが共存しているもの(化合物(A))、エポキシ基の全てがグリシジル基の化合物、

とが混在したものとなる。

【0019】また、縮合反応物(A')は、その原料成分としてβ-アルキルエピハロヒドリンを使用するため、該縮合反応物(A')中の全塩素量を低減できるという効果をも奏する。即ち、全塩素量が多い場合には半導体パッケージとした場合の配線腐食を招来するという問題を生ずるが、本発明においては全塩素量を低減し、信頼性を高めることができる。具体的な全塩素量は、特に制限されないが、縮合反応物(A')中、全塩素量が800ppm以下となることが好ましい。

【0020】上記の縮合反応物(A')の製造方法は、特に制限されるものではないが、具体的には、以下の方法が挙げられる。まず、多価フェノール化合物中の水酸基に対して2~15当量のβ-メチルエピクロロヒドリン或いはβ-メチルエピクロロヒドリンとエピクロロヒドリンの混合物を添加して溶解し、その後、多価フェノール化合物中の水酸基に対して0.8~1.2当量の10~50%NaOH水溶液を50~80℃の温度で3~5時間要して適下する。適下後その温度で0.5~2時間程度攪拌を続けて、静置後下層の食塩水を棄却する。次いで過剰のエピハロヒドリンを蒸留回収し樹脂を得る。これにトルエン、MIBK等の有機溶媒を加え、水洗-脱水-濾過-脱溶媒工程を経て、目的の樹脂を得ることができる。また不純物塩素量の低減等を目的に、反応の際ジオキサン、DMSO等の溶媒を併用しても良い。

【0021】本発明における化合物(A)或いは縮合反応物(A')は、それ自体の熔融粘度が著しく低いため、無機充填材を高充填でき、成形物の耐熱性、耐水性を著しく向上でき、耐ハンダクラック性が著しく良好となる。また、無機充填材を高充填しても得られた材料が優れた流動性を有するため薄型化した半導体パッケージへの成形も容易である他、一般的に高流動性と相反する特性である保存安定性も兼備したものとなる。更に、既述の通り、エポキシ樹脂の低全塩素量化も達成できる為に、配線腐食防止等の高信頼性をも合わせ持つ半導体封止材料となる。

【0022】以上詳述した化合物(A)を含む縮合反応物(A')は、更に硬化剤(B)及び無機充填材(C)と配合することにより、目的とする半導体封止材料を得ることができる。

【0023】ここで、硬化剤(B)としては、エポキシ基と反応し得る活性水素原子を有する化合物であればよく、特に制限されるものではないが、1分子中にフェノール性水酸基を2個以上含有する化合物であることが、硬化特性並びに耐熱性等の点から好ましく、例示するならばフェノール-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるフェノールノボラック樹脂、クレゾール-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるC1~C10のモノアルキル置換フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物、キシレノール-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるC1~C10のジアルキル置換フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物、ビスフェノールA-ホルムアルデヒド重縮合物に代表されるビスフェノール類-ホルムアルデヒド重縮合物、その他、フェノールとC1~C10のモノアルキル置換フェノールとホルムアルデヒドとの共重縮合物、フェノール類とジシクロペンタジエン、リモネン、ピネン等の環状ジエンとの重付加物、フェノール類とジビニルベンゼンの重付加物等が挙げられる。

【0024】中でも硬化性、耐熱性等が優れることから、フェノール-ホルムアルデヒド重縮合物、クレゾールノボラック-ホルムアルデヒド重縮合物、ジシクロペンタジエン-フェノール重付加物が特に好ましい。

【0025】上記された如き各化合物を硬化剤として用いる際は、硬化促進剤を適宜使用することができる。硬化促進剤としては公知慣用のものがいずれも使用できるが、例えば、第3級アミン類、イミダゾール類、有機酸金属塩類、アミン錯塩、トリフェニルホスフィン等のリン系化合物等が挙げられ、これらは単独のみならず2種以上の併用も可能である。

【0026】本発明で用いる無機充填材(C)は、硬化物の機械強度を高めることのみならず、低吸水性、低線膨張係数を達成し、ハンダクラック防止効果を高めるための必須の成分であり、具体的には限定されるものではないが、例えば粉末シリカ、アルミナ、タルク、クレー、ガラス繊維等が挙げられるが、特に耐湿性及び耐ハンダクラック性に優れる点から粉末シリカが好ましい。

【0027】また、粉末シリカとしては、更に具体的には熔融シリカ、結晶シリカ、球状シリカ、粉碎シリカ等が挙げられるが、なかでも流動性に優れる点から熔融シリカが好ましい。

【0028】無機充填材(C)の粒径としては、特に限定されないが、5ミクロン以下等の小粒径が好ましい。また、流動性を良くするために、種々の粒径分布を持ったものを使用することができる。

【0029】また、無機充填材(C)の配合量は特に制限されるものではないが、その配合量が多ければ多い程、機械強度並びにハンダクラック防止効果が顕著なものとなる点から好ましく、具体的には、組成物中80~95重量%の範囲で用いることが、それらの特性が際立つものとなる点から好ましい。

【0030】また本発明の組成物は、必須成分である上述した化合物(A)或いは該化合物(A)を含む縮合反応物(A')の他に、さらに本発明の組成物の特性を損なわない範囲で、その他のエポキシ樹脂を併用しても構わない。

【0031】この際に用いられるその他エポキシ樹脂としては、公知慣用のものが何れも使用でき、例えばビスフェノールAジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾール

ノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールFノボラック型エポキシ樹脂、臭素化フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、ピフェニル型2官能エポキシ樹脂、ヒドロキシベンズアルデヒドとフェノール類との縮合物のポリグリシジルエーテル等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらの中でも、特に耐熱性に優れる点からオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂が、また流動性に優れる点からピフェニル型2官能エポキシ樹脂が好ましい。

【0032】また必要に応じて、着色剤、難燃剤、離型剤、シリコンオイルあるいはシリコン樹脂等の低応力化剤、カップリング剤等の公知慣用の各種の添加剤成分も適宜配合せしめることができる。

【0033】次に、上記した各成分から目的とする半導体封止材料を調製するには、多価エポキシ化合物(A)若しくは縮合反応物(A')、硬化剤(B)及び無機充填材(C)、更に必要に応じ、硬化促進剤、添加剤、その他のエポキシ樹脂をミキサー等によって十分に均一に混合した後、更に熱ロールまたはニーダー等で溶融混練し、冷却後粉碎し、さらに成形機でタブレット状に成形する事により為される。

【0034】この様にして得られる本発明の半導体封止材料は、保存安定性が優れ、不純物塩素量が少ない高純度物であり、半導体チップへ成形したものは耐ハンダクラック性に著しく優れる。また、エポキシ樹脂自体の低溶融粘度の特性により、無機充填材の高充填率化を可能にし、優れた耐ハンダクラック性を有す。

【0035】尚、本発明における保存安定性は、半導体封止材料を室温(20~35℃)に3~5日間放置した場合における安定性がとりわけ良好であり、この際の、硬化時間の短縮及び流動性の低下の程度が小さく優れた成形性を発現するものである。

【0036】

【実施例】次に本発明を製造例、実施例およびその比較例により具体的に説明する。尚、例中において部は特に断りのない限りすべて重量部である。

【0037】尚、溶融粘度は50HzのもとにおいてResearch equipment LTD. 製「ICI CONE & PLATE VISCOMETER」で測定した。

【0038】全塩素含有量は次の測定法で測定した。樹脂0.3gをn-BuOH20mlで溶解後、金属ナトリウム1gを添加し、120℃で3時間加熱処理をする。それを硝酸銀水溶液を用い適定法して、その適定量から、全塩素含有量を算出した。ゲルタイムは、配合物を175℃で加熱攪拌し、流動性が失われた時点とした。

【0039】製造例1

攪拌機、温度計、冷却器付きデカンターを付した4つ口フラスコにビスフェノールA228g(1モル)にβ-

メチルエピクロロヒドリン1065g(10モル)を入れ溶解する。それに減圧下、80℃で48%NaOH水溶液147g(1.8モル)を3時間かけて攪拌しながら滴下した。その間、フラスコを加熱してβ-メチルエピクロロヒドリンと水を蒸留し、デカンターで冷却器で凝縮したβ-メチルエピクロロヒドリンと水を分離し、β-メチルエピクロロヒドリンをフラスコ内に戻し続けた。さらに30分間攪拌を続けてその後、水を180gを加え静置した。下層の食塩水を棄却し、β-メチルエピクロロヒドリンを150℃で蒸留回収した後、粗樹脂にMIBK400gを加え、さらに3%NaOH水溶液水200gを加え80℃にて1時間攪拌した。そして下層の水層を棄却した。その後、さらにMIBK層を水200gで水洗し、水を棄却した後、脱水、濾過を経てMIBKを150℃で脱溶剤して目的のエポキシ樹脂(A)352gを得た。150℃での溶融粘度0.08ポイズ、エポキシ当量は210g/eq、全塩素量が640ppmであった。

【0040】製造例2

β-メチルエピクロロヒドリンをβ-メチルエピクロロヒドリン533g(5モル)とエピクロロヒドリン461g(5モル)の混合物に変更した以外は製造例1と同様にして、エポキシ樹脂300gを得た。この樹脂は150℃での溶融粘度0.06ポイズ、エポキシ当量は202g/eq、全塩素が790ppmであった。

【0041】製造例3

ビスフェノールAの代わりに1,6-ジヒドロキシナフタレン160gを使用する以外は製造例1と同様にして、エポキシ樹脂(C)299gを得た。この樹脂は150℃での溶融粘度0.12ポイズ、エポキシ当量は176g/eq、全塩素含有量は650ppmであった。

【0042】製造例4

β-メチルエピクロロヒドリンをβ-メチルエピクロロヒドリン852g(8モル)とエピクロロヒドリン185g(2モル)の混合物に変更した以外は製造例3と同様にして、エポキシ樹脂296gを得た。この樹脂は150℃での溶融粘度0.10ポイズ、エポキシ当量は169g/eq、全塩素が690ppmであった。

【0043】実施例1~7及び比較例1~3

比較にオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂であるEPICLON N-665(大日本インキ化学工業(株)製:150℃の溶融粘度3.0ポイズ、エポキシ当量208g/eq、全塩素1080ppm)と、ビスフェノールAとエピクロロヒドリンの縮合型エポキシ樹脂であるEPICLON 850S(大日本インキ化学工業(株)製:150℃の溶融粘度0.04ポイズ、エポキシ当量188g/eq、全塩素1450ppm)と、1,6-ジヒドロキシナフタレンとエピクロロヒドリンの縮合型エポキシ樹脂であるEPICLON HP-4032(大日本インキ化学工業(株)製:1

50℃の熔融粘度0.08ポイズ、エポキシ当量150g/eq、全塩素1720ppm)にして以下の評価を行った。

【0044】第1表及び第2表で表される配合に従って調製した混合物を熱ロールにて100℃・8分間混練りし、その後粉碎したものをプレス成形機にて30Kg/cm²、金型温度175℃、成形時間100秒の条件下にて封止し、厚さ2mmの評価用試験片を作成した。その後175℃で8時間の後硬化を施した。尚、熔融シリカの配合量は、得られた配合物の流動性が同一になるように調整された。また、フェノールノボラック硬化剤として、フェノライトTD-2131(大日本インキ化学工業(株)製：水酸基当量：104g/eq.)を使用した。

【0045】この評価用試験片を用い、175℃のスパ

イラルフローと85℃・85%RH条件下での吸水率、及び動的粘弾性測定器によるガラス転移温度を測定した。また保存安定性試験として、封止材料を30℃で72時間保存した後のスパイラルフローを測定し、その保持率を求めた。さらに160℃×20時間、4気圧の条件下におけるプレッシャークッカーテストを行い抽出水中の塩素イオン量を測定した。また試験片を85℃・85%RHの雰囲気下中72時間放置し、吸湿処理を行った後、これを260℃のハンダ浴に10秒浸せし、その際のクラック発生率を調べて耐ハンダクラック性を評価した。試験片数は20個。この結果を同じく第1表に示す。

【0046】

【表1】

第 1 表

		実 施 例			
		1	2	3	4
配 合	エポキシ樹脂 (A)	67	—	—	—
	エポキシ樹脂 (B)	—	66	—	—
	エポキシ樹脂 (C)	—	—	63	—
	エポキシ樹脂 (D)	—	—	—	62
	EPICLON 153	5	5	5	5
	TD-2131	29	28	29	30
	トリフェニルフォスフィン	1	1	1	1
	カルバナワックス	0.5	0.5	0.5	0.5
	三酸化アンチモン	8	8	8	8
	カーボンブラック	0.5	0.5	0.5	0.5
評 価	カップリング剤	0.5	0.5	0.5	0.5
	熔融シリカ粉末	740	740	740	740
	スパイラルフロー (cm)	78	80	74	77
	スパイラルフロー保持率 (%)	87	80	88	81
	吸水率 (%)	0.20	0.21	0.22	0.22
	ガラス転移温度 (℃)	140	141	152	154
	PCT抽出塩素イオン (ppm)	35	42	41	46
	ハンダクラック発生率 (%)	0	5	0	5

【0047】

【表2】

第 2 表

		比 較 例		
		1	2	3
配 合	EPICLON N-665	67	—	—
	EPICLON 850	—	64	—
	EPICLON HP-4032	—	—	57
	EPICLON 153	5	5	5
	TD-2131	28	28	28
	トリフェニルフォスフィン	1	1	1
	カルバナワックス	0.5	0.5	0.5
	三酸化アンチモン	8	8	8
	カーボンブラック	0.5	0.5	0.5
	カップリング剤	0.5	0.5	0.5
熔融シリカ粉末		740	740	740
評 価	スパイラルフロー (cm)	42	80	78
	スパイラルフロー保持率 (%)	92	63	62
	吸水率 (%)	0.30	0.22	0.27
	ガラス転移温度 (℃)	178	142	159
	PCT抽出塩素イオン (ppm)	52	56	82
	ハンダクラック発生率 (%)	100	20	10

【0048】

【発明の効果】本発明によれば、流動性が著しく良好で

高実装密度化に充分対応可能であって、かつ、保存安定性をも兼備した半導体封止材料を提供できる。

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the new semi-conductor closure ingredient excellent in especially preservation stability and a fluidity.

[0002]

[Description of the Prior Art] In recent years, a semiconductor package corresponds to high packaging-density-ization, and is in the thin-shape-ized inclination, and a TSOP mold package with a thickness of 1mm or less is also used. Corresponding to this, the ingredient with a more high fluidity is called for also for the semi-conductor closure ingredient.

[0003] Although the epoxy constituent for IC packages which used polyglycidyl ether of o-cresol-form aldehyde novolac (henceforth "ECN") was widely used as an epoxy resin for semi-conductor closure ingredients until now, and the IC package which used the resin concerned was excellent in thermal resistance, it had the defect in which a fluidity was remarkably bad and the correspondence to said raise in packaging density became difficult since melt viscosity is high. On the other hand, although the IC package which used the liquefied mold bisphenol mold epoxy resin was also known, because of low melt viscosity, the thermal resistance of what can offer a fluid good closure ingredient cannot present practical use bad, and ** and preservation stability were very bad.

[0004] Then, the semi-conductor closure ingredient using the naphthalene system epoxy resin which epichlorohydrin is made to react to 1 and 6-dihydroxy naphthalene, and is obtained, for example as a semi-conductor closure ingredient which is excellent in thermal resistance at a fluid list, and can respond to high packaging-density-ization conventionally as base resin is known.

[0005]

[Problem(s) to be Solved] However, the preservation stability of a semi-conductor closure ingredient was very bad, therefore turned into fast curability from design that time at the time of practical use, the flow was shortened, and the semi-conductor closure ingredient used the naphthalene system epoxy resin which epichlorohydrin is make to react to the above 1 and 6-dihydroxy naphthalene, and is obtain as base resin had the big technical problem that fault was caused to a moldability, although melt viscosity was low excellent in *****.

[0006] The technical problem which this invention tends to solve is to offer the semi-conductor closure ingredient which combined the outstanding preservation stability and a fluidity.

[0007]

[Means for Solving the Problem] As a result of inquiring wholeheartedly, by using the multiple-valued epoxy compound which has beta-alkyl glycidyl group as an epoxy group as base resin, this invention person etc. finds out the above-mentioned technical problem, and came to complete this invention.

[0008] That is, this invention relates to the semi-conductor closure ingredient characterized by using as an indispensable component the multiple-valued epoxy compound (A), the curing agent (B), and the inorganic filler (C) which have beta-alkyl glycidyl group as an epoxy group.

[0009] In the multiple-valued epoxy compound (A) which has beta-alkyl glycidyl group as an epoxy

group, although are not limited especially as a beta-alkyl glycidyl group, and beta-methyl glycidyl group, beta-ethyl glycidyl group, beta-propyl glycidyl group, beta-butyl glycidyl group, etc. are mentioned for example, the point that preservation stability is remarkable and good about especially to beta-methyl glycidyl group is desirable.

[0010] As a multiple-valued epoxy resin which has the above-mentioned beta-alkyl glycidyl group Specifically The G beta-alkyl glycidyl ether of bisphenol A, Are represented by the G beta-alkyl glycidyl ether of Bisphenol F, and the G beta-alkyl glycidyl ether of Bisphenol S. G beta-alkyl glycidyl ether of bisphenols; The G beta-alkyl glycidyl ether of biphenol, G beta-alkyl glycidyl ether of the biphenol represented by the G beta-alkyl glycidyl ether of tetramethyl biphenol; The G beta-alkyl glycidyl ether of dihydroxy naphthalene, To the G beta-alkyl glycidyl ether of binaphthol beta-alkyl glycidyl ether [of the naphthols represented]; Polly beta-alkyl glycidyl ether of a phenol-formaldehyde polycondensation object; The Polly beta-alkyl of the monoalkyl permutation phenol-formaldehyde polycondensation object of C1-C10 which are represented by the Polly beta-alkyl glycidyl ether of a cresol-formaldehyde polycondensation object Glycidyl ether; Polly beta-alkyl glycidyl ether of the dialkyl permutation phenol-formaldehyde polycondensation object of C1-C10 which are represented by the Polly beta-alkyl glycidyl ether of a xylenol-formaldehyde polycondensation object; Polly beta-A of a bisphenol A-formaldehyde polycondensation object Polly beta-alkyl glycidyl ether of the bisphenols-formaldehyde polycondensation object represented by RUKIRU glycidyl ether; Phenols and a dicyclopentadiene, Polly beta-alkyl glycidyl ether of a polyaddition object with annular dienes, such as a limonene and a pinene; the Polly beta-alkyl glycidyl ether of the polyaddition object of phenols and a divinylbenzene etc. is mentioned.

[0011] beta-alkyl glycidyl ether of naphthols is desirable in the G beta-alkyl glycidyl ether of the point that a fluidity and preservation stability are good about especially to bisphenols, and a list, thermal resistance is remarkably good especially in them, and the G beta-alkyl glycidyl ether of the point which becomes good [both thermal resistance a fluidity and preservation stability] to dihydroxy naphthalene is desirable. Although there are several sorts of isomers in the G beta-alkyl glycidyl ether of dihydroxy naphthalene, the G beta-alkyl glycidyl ether of 1 and 6-dihydroxy naphthalene is desirable from the point that thermal resistance is excellent also in it.

[0012] the above-mentioned multiple-valued epoxy compound (A) -- supra -- the bottom, like a compound, all those epoxy groups do not need to be the compounds of beta-alkyl glycidyl group, and the part may be the thing of a glycidyl group. Moreover, it can also be used for the bottom of coexistence with the epoxy compound which has only a glycidyl group.

[0013] Especially as an approach of obtaining such a multiple-valued epoxy compound (A), although not restricted, it is desirable for an approach to carry out the condensation reaction of the polyhydric-phenol compound to beta-methyl epihalohydrin to be mentioned, and to use this condensation reaction object (A') as an epoxy resin component containing a multiple-valued epoxy compound (A).

[0014] As beta-alkyl epihalohydrin used here Although not restricted especially, beta-methyl epichlorohydrin, beta-methyl epibromohydrin, beta-methyl epihalohydrin, such as beta-methyl EPIFUROROH drine compounds, beta-ethyl epichlorohydrin, beta-ethyl epihalohydrin, such as beta-ethyl epibromohydrin and beta-ethyl EPIFUROROH drine compounds, beta-propyl epichlorohydrin, beta-propyl epibromohydrin, Although beta-butyl epihalohydrin, such as beta-propyl epihalohydrin, such as beta-propyl EPIFUROROH drine compounds, beta-butyl epichlorohydrin, beta-butyl epibromohydrin, and beta-butyl EPIFUROROH drine compounds, etc. is mentioned A fluid point to beta-methyl epihalohydrin is desirable in a reactant list with a polyhydric phenol especially.

[0015] Moreover, if it is the compound which contained two or more aromaticity hydroxyl groups in 1 molecule as a polyhydric-phenol compound Although a class is not limited, if it illustrates, bisphenol A, Bisphenol F Biphenol, such as bisphenols, such as Bisphenol S, biphenol, and tetramethyl biphenol Naphthols, such as dihydroxy naphthalene and binaphthol, the phenol novolak resin represented by the phenol-formaldehyde polycondensation object, The monoalkyl permutation phenol-formaldehyde polycondensation object of C1-C10 which are represented by the cresol-formaldehyde polycondensation object, The dialkyl permutation phenol-formaldehyde polycondensation object of C1-C10 which are

represented by the xylenol-formaldehyde polycondensation object, The bisphenols-formaldehyde polycondensation object represented by the bisphenol A-formaldehyde polycondensation object, In addition, the polyaddition object of the copolycondensation object of a phenol, the monoalkyl permutation phenol of C1-C10, and formaldehyde, phenols, and annular dienes, such as a dicyclopentadiene, a limonene, and a pinene, the polyaddition object of phenols and a divinylbenzene, etc. are mentioned. The bisphenols from the point of a fluidity and preservation stability and naphthols are desirable especially, and the point that especially thermal resistance becomes good and both thermal resistance a fluidity and preservation stability become good to dihydroxy naphthalene is desirable. Moreover, although there are several sorts of isomers in dihydroxy naphthalene like the case in the example of a multiple-valued epoxy compound (A), 1 and 6-dihydroxy naphthalene is desirable from the point that thermal resistance is excellent also in it.

[0016] Moreover, although you may react only using beta-alkyl epihalohydrin in case a condensation reaction object (A') is manufactured, a fluidity can be raised more to use a part of epihalohydrin together according to the purpose. However, since preservation stability becomes what was extremely excellent by raising the operating rate of ** et al. and beta-alkyl epihalohydrin and also the effectiveness that the impurity chlorinity further contained in an epoxy resin is reduced more is discovered, the mixed ratio can be suitably adjusted according to an application and demand characteristics.

[0017] The range of 90 / 10 - 30/70 is desirable at the mole ratio of the point that especially these property balance becomes good to beta-alkyl epihalohydrin / epihalohydrin, and especially the range of 80 / 20 - 40/60 is desirable.

[0018] In addition, when beta-alkyl epihalohydrin and epihalohydrin are used together and it is made to react with a polyhydric phenol like the above, as for the condensation reaction object (A') obtained, all the epoxy groups become that (compound (A)) with which beta-alkyl glycidyl group and the glycidyl group coexist in the compound (compound (A)) of beta-alkyl glycidyl group, and a compound, and the thing in which the compound of a glycidyl group was intermingled by all the epoxy groups.

[0019] Moreover, since beta-alkyl epihalohydrin is used for a condensation reaction object (A') as the raw material component, it also does so the effectiveness that all the chlorinity in this condensation reaction object (A') can be reduced. That is, although the problem of inviting the wiring corrosion at the time of considering as a semiconductor package is produced when there is much all chlorinity, all chlorinity can be reduced in this invention and dependability can be raised. Although especially all concrete chlorinity is not restricted, it is desirable among a condensation reaction object (A') that all chlorinity is set to 800 ppm or less.

[0020] Although especially the manufacture approach of the above-mentioned condensation reaction object (A') is not restricted, specifically, the following approaches are mentioned. First, to the hydroxyl group in a polyhydric-phenol compound, the mixture of 2-15Eq beta-methyl epichlorohydrin or beta-methyl epichlorohydrin, and epichlorohydrin is added, and it dissolves, and after that, the temperature of 50-80 degrees C takes a NaOH water solution 10 to 50 0.8-1.2Eq% to the hydroxyl group in a polyhydric-phenol compound for 3 to 5 hours, and it carries out under **. Stirring is continued at the temperature behind the bottom of ** for about 0.5 to 2 hours, and the brine of an after [standing] lower layer is rejected. Subsequently, distillation recovery of the superfluous epihalohydrin is carried out, and ***** is obtained. Organic solvents, such as toluene and MIBK, can be added to this, and target resin can be obtained through a rinsing-dehydration-filtration-deliquoring process. Moreover, for the purpose of reduction of impurity chlorinity etc., solvents, such as dioxane and DMSO, may be used together in the case of a reaction.

[0021] Since the melt viscosity of itself is remarkable and the compound (A) or condensation reaction object (A') which can set this invention has it, it can be high-filled up with an inorganic filler and can improve the thermal resistance of a moldings, and a water resisting property remarkably, and pewter-proof crack nature becomes it is remarkable and good. [low] Moreover, since it has the fluidity excellent in the ingredient obtained even if high-filled up with the inorganic filler, shaping to the thin-shape-ized semiconductor package is also easy, and also it becomes what also had the preservation stability which is a property which generally disagrees with a high fluidity. Furthermore, since ****

chlorinity-ization of an epoxy resin can also be attained as stated above, it becomes a semi-conductor closure ingredient also having high-reliability, such as wiring corrosion prevention.

[0022] The condensation reaction object (A') containing the compound (A) explained in full detail above can obtain the semi-conductor closure ingredient made into the purpose by blending with a curing agent (B) and an inorganic filler (C) further.

[0023] That what is necessary is just the compound which has an epoxy group and the active hydrogen atom which can react as a curing agent (B) here That it is the compound which contains two or more phenolic hydroxyl groups in 1 molecule although not restricted especially The phenol novolak resin represented by the phenol-formaldehyde polycondensation object if it is desirable in a hardening property list and illustrates from points, such as thermal resistance, in it, The monoalkyl permutation phenol-formaldehyde polycondensation object of C1-C10 which are represented by the cresol-formaldehyde polycondensation object, The dialkyl permutation phenol-formaldehyde polycondensation object of C1-C10 which are represented by the xylenol-formaldehyde polycondensation object, The bisphenols-formaldehyde polycondensation object represented by the bisphenol A-formaldehyde polycondensation object, In addition, the polyaddition object of the copolycondensation object of a phenol, the monoalkyl permutation phenol of C1-C10, and formaldehyde, phenols, and annular dienes, such as a dicyclopentadiene, a limonene, and a pinene, the polyaddition object of phenols and a divinylbenzene, etc. are mentioned.

[0024] Since hardenability, thermal resistance, etc. are excellent especially, a phenol-formaldehyde polycondensation object, a cresol novolak-formaldehyde polycondensation object, and especially a dicyclopentadiene-phenol polyaddition object are desirable.

[0025] In case **** each compound described above is used as a curing agent, a hardening accelerator can be used suitably. Although each thing of well-known common use can use it as a hardening accelerator, for example, the Lynn system compounds, such as tertiary amine, imidazole derivatives, organic-acid metal salts, amine complex salt, and triphenyl phosphine, etc. are mentioned, and not only independent but two or more sorts of concomitant use is possible for these.

[0026] Although the inorganic filler (C) used by this invention is an indispensable component for attaining not only raising the mechanical strength of a hardened material but low water absorption and low coefficient of linear expansion, and heightening the pewter crack prevention effectiveness, and is not specifically limited, and a powder silica, an alumina, talc, clay, a glass fiber, etc. are mentioned, for example, the point of excelling in moisture resistance and pewter-proof crack nature especially to its powder silica is desirable.

[0027] Moreover, although a fused silica, crystal silica, spherical silica, and grinding silica etc. is still more specifically mentioned as a powder silica, a point to the fused silica which is excellent in a fluidity especially is desirable.

[0028] Especially as a particle size of an inorganic filler (C), although not limited, diameters of a granule, such as 5 etc. microns or less, are desirable. Moreover, in order to improve a fluidity, a thing with various particle size distribution can be used.

[0029] Moreover, especially the loadings of an inorganic filler (C) are desirable from the point that the more the pewter crack prevention effectiveness will become remarkable at a mechanical strength list the more there are many the loadings, although not restricted, and it is desirable from the point that using in 80 - 95% of the weight of the range among a constituent specifically becomes that for which those properties are conspicuous.

[0030] Moreover, the constituent of this invention may use other epoxy resins together in the range which does not spoil further the property of the constituent of this invention other than the condensation reaction object (A') containing the compound (A) or this compound (A) which is an indispensable component, and which was mentioned above.

[0031] in this case, as other epoxy resins used Each thing of well-known common use can use it. For example, a bisphenol A diglycidyl ether mold epoxy resin, A phenol novolak mold epoxy resin, polyglycidyl ether of o-cresol-form aldehyde novolac, The bisphenol A novolak mold epoxy resin, a bisphenol F novolak mold epoxy resin, Although the poly glycidyl ether of the condensate of a

bromination phenol novolak mold epoxy resin, a naphthol novolak mold epoxy resin, a biphenyl mold 2 organic-functions epoxy resin, a hydroxy benzaldehyde, and phenols etc. is mentioned, it is not limited to these. The point that polyglycidyl ether of o-cresol-form aldehyde novolac is excellent in a fluidity from the point of excelling especially in thermal resistance, also in these again to a biphenyl mold 2 organic-functions epoxy resin is desirable.

[0032] Moreover, various kinds of additive components of well-known common use of low stress-sized agents, such as a coloring agent, a flame retarder, a release agent, silicone oil, or silicone resin, a coupling agent, etc. can also be made to blend suitably if needed.

[0033] Next, in order to prepare the semi-conductor closure ingredient made into the purpose from each above-mentioned component A multiple-valued epoxy compound (A) or a condensation reaction object (A'), a curing agent (B), and an inorganic filler (C), Furthermore, after fully mixing a hardening accelerator, an additive, and other epoxy resins to homogeneity by a mixer etc. if needed, melting kneading is further carried out by the hot calender roll or the kneader, and it grinds after cooling, and is accomplished by fabricating with a making machine in the shape of a tablet further.

[0034] Thus, the semi-conductor closure ingredient of this invention obtained is excellent in preservation stability, it is a high grade object with little impurity chlorinity, and what was fabricated to the semiconductor chip is remarkably excellent in pewter-proof crack nature. Moreover, with the property of low melt viscosity of the epoxy resin itself, high filling factor-ization of an inorganic filler is enabled and it has the outstanding pewter-proof crack nature.

[0035] In addition, the preservation stability in this invention divides and has the good stability at the time of leaving a semi-conductor closure ingredient for three - five days in a room temperature (20-35 degrees C), and the compaction of the setting time in this case and extent of a fluid fall discover the small excellent moldability.

[0036]

[Example] Next, the example of manufacture, an example, and its example of a comparison explain this invention concretely. In addition, unless the section has a notice especially in an example, it is the weight section altogether.

[0037] In addition, melt viscosity was measured by the product "ICI CONE & PLATE VISCOMETER" made from Reseach equipment LTD. in the 50Hz basis.

[0038] The total chlorine content was measured by the following measuring method. 1g of metallic sodium is added for 0.3g of resin after the dissolution by n-BuOH20ml, and heat-treatment is carried out at 120 degrees C for 3 hours. The **** method of it was carried out using the silver-nitrate water solution, and the total chlorine content was computed from the *****. The gel time carried out heating stirring of the compound at 175 degrees C, and was taken as the time of a fluidity being lost.

[0039] beta-methyl epichlorohydrin 1065g (ten mols) is put into 4 opening flask which attached of manufacture 1 agitator, the thermometer, and the decanter with a condensator at 228g (one mol) of bisphenol A, and it dissolves. It was dropped stirring [to it] 147g (1.8 mols) of NaOH water solutions over 3 hours under reduced pressure 48% at 80 degrees C. A flask is heated, beta-methyl epichlorohydrin and water are distilled, beta-methyl epichlorohydrin and water which were condensed with the condensator with the decanter are separated, and in the meantime, returning beta-methyl epichlorohydrin was continued in the flask. Stirring was continued for 30 more minutes, after that, 180g was added and water was put. After rejecting lower layer brine and carrying out distillation recovery of the beta-methyl epichlorohydrin at 150 degrees C, MIBK400g was added to rough resin, 200g of NaOH water-solution water was added 3 more%, and it stirred at 80 degrees C for 1 hour. And the lower layer water layer was rejected. Then, after rinsing the MIBK layer by 200g of water further and rejecting water, desolventization of the MIBK was carried out at 150 degrees C through dehydration and filtration, and epoxy resin (A)352g of the purpose was obtained. 210 g/eq and all the chlorinity of 0.08poise of 150-degree C melt viscosity and weight per epoxy equivalent were 640 ppm.

[0040] 300g of epoxy resins was obtained like the example 1 of manufacture except having changed example of manufacture 2beta-methyl epichlorohydrin into mixture (beta-methyl epichlorohydrin 533g (five mols) and epichlorohydrin 461g (five mols)). As for this resin, 202 g/eq and all the chlorine of

0.06poise of 150-degree C melt viscosity and weight per epoxy equivalent were 790 ppm.

[0041] Epoxy resin (C)299g was obtained like the example 1 of manufacture except using 1 and 6-dihydroxy naphthalene 160g instead of example of manufacture 3 bisphenol A. This resin was [176g/eq and the total chlorine content of 0.12poise of 150-degree C melt viscosity and weight per epoxy equivalent] 650 ppm.

[0042] 296g of epoxy resins was obtained like the example 3 of manufacture except having changed example of manufacture 4beta-methyl epichlorohydrin into mixture (beta-methyl epichlorohydrin 852g (eight mols) and epichlorohydrin 185g (two mols)). As for this resin, 169 g/eq and all the chlorine of 0.10poise of 150-degree C melt viscosity and weight per epoxy equivalent were 690 ppm.

[0043] it is polyglycidyl ether of o-cresol-form aldehyde novolac at one to examples 1-7 and example of comparison 3 comparison -- coming out -- a certain EPICLON With N-665 (Dainippon Ink & Chemicals [, Inc.] make: 3.0poise of 150-degree C melt viscosity, weight-per-epoxy-equivalent 208 g/eq, 1080 ppm of all chlorine) EPICLON which is the condensation mold epoxy resin of bisphenol A and epichlorohydrin 850S (Dainippon Ink & Chemicals [, Inc.] make: 0.04poise of 150-degree C melt viscosity, weight-per-epoxy-equivalent 188 g/eq, 1450 ppm of all chlorine), EPICLON which is the condensation mold epoxy resin of 1 and 6-dihydroxy naphthalene and epichlorohydrin Make it HP-4032 (Dainippon Ink & Chemicals [, Inc.] make: 0.08poise of 150-degree C melt viscosity, weight-per-epoxy-equivalent 150 g/eq, 1720 ppm of all chlorine). The following evaluations were performed.

[0044] It kneaded for 8 minutes, 100 degrees C and the thing ground after that were closed for the mixture prepared according to the combination expressed in the 1st table and the 2nd table with the press-forming machine with the hot calender roll under 30 kg/cm², the die temperature of 175 degrees C, and the conditions for cycle time 100 seconds, and the test piece for evaluation with a thickness of 2mm was created. Postcure of 8 hours was given at 175 degrees C after that. In addition, the loadings of fused silica were adjusted so that the fluidity of the obtained compound might become the same.

Moreover, FENO light TD-2131 (Dainippon Ink & Chemicals [, Inc.] make: hydroxyl equivalent : 104g/eq.) was used as a phenol novolak curing agent.

[0045] The water absorption under 175-degree C spiral flow, and 85 degree C and 85%RH conditions and the glass transition temperature by the dynamic viscoelasticity measuring instrument were measured using this test piece for evaluation. Moreover, as a preservation stability test, the spiral flow after saving a closure ingredient at 30 degrees C for 72 hours was measured, and it asked for the retention. The pressure cooker test under the conditions of four atmospheric pressures was performed, and the extract underwater amount of chlorine ions was measured for 160 more degree-Cx 20 hours. Moreover, after RH's having left the test piece 85 degree C and 85% for ambient atmosphere Shimonaka 72 hours and performing moisture absorption processing, the dipping of this was carried out to the 260-degree C pewter bath for 10 seconds, the crack incidence rate in that case was investigated, and pewter-proof crack nature was evaluated. The number of test pieces is 20 pieces. Similarly this result is shown in the 1st table.

[0046]

[Table 1]

第 1 表

		実 施 例			
		1	2	3	4
配 合	エポキシ樹脂 (A)	67	—	—	—
	エポキシ樹脂 (B)	—	66	—	—
	エポキシ樹脂 (C)	—	—	63	—
	エポキシ樹脂 (D)	—	—	—	62
	EPICLON 153	5	5	5	5
	TD-2131	29	28	29	30
	トリフェニルフォスフィン	1	1	1	1
	カルバナワックス	0.5	0.5	0.5	0.5
	三酸化アンチモン	8	8	8	8
	カーボンブラック	0.5	0.5	0.5	0.5
	カップリング剤	0.5	0.5	0.5	0.5
溶融シリカ粉末		740	740	740	740
評 価	スパイラルフロー (cm)	78	80	74	77
	スパイラルフロー保持率 (%)	87	80	88	81
	吸水率 (%)	0.20	0.21	0.22	0.22
	ガラス転移温度 (℃)	140	141	152	154
	PCT抽出塩素イオン (ppm)	35	42	41	46
	ハンダクラック発生率 (%)	0	5	0	5

[0047]

[Table 2]

第 2 表

		比 較 例		
		1	2	3
配 合	EPICLON N-665	67	—	—
	EPICLON 850	—	64	—
	EPICLON HP-4032	—	—	57
	EPICLON 153	5	5	5
	TD-2131	28	28	28
	トリフェニルフォスフィン	1	1	1
	カルバナワックス	0.5	0.5	0.5
	三酸化アンチモン	8	8	8
	カーボンブラック	0.5	0.5	0.5
	カップリング剤	0.5	0.5	0.5
溶融シリカ粉末		740	740	740
評 価	スパイラルフロー (cm)	42	80	78
	スパイラルフロー保持率 (%)	92	63	62
	吸水率 (%)	0.30	0.22	0.27
	ガラス転移温度 (°C)	178	142	159
	PCT抽出塩素イオン (ppm)	52	56	82
	ハンダクラック発生率 (%)	100	20	10

[0048]

[Effect of the Invention] According to this invention, the semi-conductor closure ingredient with which the fluidity was remarkably good, and was able to be enough responded to high packaging-density-ization, and also had preservation stability can be offered.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. **** shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The semi-conductor closure ingredient characterized by using as an indispensable component the multiple-valued epoxy compound (A), the curing agent (B), and the inorganic filler (C) which have beta-alkyl glycidyl group as an epoxy group.

[Claim 2] The semi-conductor closure ingredient according to claim 1 whose beta-alkyl glycidyl group is beta-methyl glycidyl group.

[Claim 3] The semi-conductor closure ingredient according to claim 1 or 2 whose multiple-valued epoxy compound (A) is beta-alkyl glycidyl ether of bisphenols, or beta-alkyl glycidyl ether of naphthols.

[Claim 4] The semi-conductor closure ingredient according to claim 1, 2, or 3 using a multiple-valued epoxy compound (A) as a condensation reaction object (A') of beta-alkyl epihalohydrin and a polyhydric-phenol compound.

[Claim 5] The semi-conductor closure ingredient according to claim 4 to which a condensation reaction object (A') makes beta-alkyl epihalohydrin, epihalohydrin, and a polyhydric-phenol compound react.

[Claim 6] The semi-conductor closure ingredient according to claim 5 whose operating rates of beta-alkyl epihalohydrin and epihalohydrin are 90 / 10 - 30/70 in the mole ratio of the former/latter.

[Claim 7] The semi-conductor closure ingredient according to claim 4, 5, or 6 all whose chlorinity in a condensation reaction object (A') is 800 ppm or less.

[Claim 8] The semi-conductor closure ingredient of any one publication of claim 1-7 whose content of an inorganic filler (C) is 80 - 95 % of the weight among an ingredient.

[Translation done.]